

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING OF A CHANGE

(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

From the INTERNATIONAL BUREAU

RECEIVED

JUL 20 2001

TECHNOLOGY CENTER 2800

To:

IKEUCHI, Hiroyuki
Umeda Plaza Building
Suite 401
3-25, Nishitenma 4-chome
Kita-ku, Osaka-shi
Osaka 530-0047
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 20 June 2001 (20.06.01)	
Applicant's or agent's file reference H618-01	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP99/05887	International filing date (day/month/year) 25 October 1999 (25.10.99)

1. The following indications appeared on record concerning:		
<input checked="" type="checkbox"/> the applicant	<input checked="" type="checkbox"/> the inventor	<input type="checkbox"/> the agent
<input type="checkbox"/> the common representative		
Name and Address KOBAYASHI, Mika 14-9, Nagaokagumachi 3-chome Hirakata-shi, Osaka 573-0102 Japan	State of Nationality JP	State of Residence JP
Telephone No.		
Facsimile No.		
Teleprinter No.		
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:		
<input type="checkbox"/> the person	<input checked="" type="checkbox"/> the name	<input checked="" type="checkbox"/> the address
<input type="checkbox"/> the nationality		
<input type="checkbox"/> the residence		
Name and Address YAMAGISHI, Mika 105 Sunrise-Hana 6-30-6, Tonda-cho Takatsuki-shi Osaka 569-0814 Japan	State of Nationality JP	State of Residence JP
Telephone No.		
Facsimile No.		
Teleprinter No.		
3. Further observations, if necessary:		
4. A copy of this notification has been sent to:		
<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned	
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned	
<input type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:	

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Susumu Kubo Telephone No.: (41-22) 338.83.38
----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	--------------------------------------------------------------------------------------

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents
United States Patent and Trademark
Office
Box PCT
Washington, D.C.20231
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing: 27 April 2000 (27.04.00)	
International application No.: PCT/JP99/05787	Applicant's or agent's file reference: NE+99P237A
International filing date: 20 October 1999 (20.10.99)	Priority date: 21 October 1998 (21.10.98)
Applicant: KIUCHI, Yukihiro et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:

20 October 1999 (20.10.99)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:2. The election ☒ was☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer: J. Zahra Telephone No.: (41-22) 338.83.38
-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	-------------------------------------------------------------------------

THIS PAGE BLANK (USPTO)

3
low
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference NE+99P237A	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP99/05787	International filing date (day/month/year) 20 October 1999 (20.10.99)	Priority date (day/month/year) 21 October 1998 (21.10.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08G 59/62, C08L 63/00, C08K 3/00, H01L 23/29		
Applicant NEC CORPORATION		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>3</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>3</u> sheets.</p>
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>

Date of submission of the demand 20 October 1999 (20.10.99)	Date of completion of this report 20 April 2000 (20.04.2000)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP99/05787

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:
pages _____ 1-32 _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☒ the claims:
pages _____ 2-3,5-6,8-9,11-13 _____, as originally filed
pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
pages _____, filed with the demand
pages _____ 1,4,7,10 _____, filed with the letter of _____ 24 March 2000 (24.03.2000)
- ☒ the drawings:
pages _____ 1 _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP99/05787

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-13	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-13	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-13	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

Claims 1 to 13 describe the idea of a cured epoxy resin composition which, although it contains no flame retardant or flame retardant auxiliary, forms a foam layer and shows flame retardance when it ignites or undergoes thermal decomposition. Such an idea is not described in document 1 [JP, 8-253551, A (Yuka Shell Epoxy K.K.), 1 October 1996 (01.10.96)], document 2 [JP, 7-238141, A (Sumitomo Bakelite Company, Ltd.), 12 September 1995 (12.09.95)], and document 3 [JP, 8-245754, A (Toshiba Chemical Corp.), 24 September 1996 (24.09.96)]. Claims 1 to 13 possess both novelty and an inventive step.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

P C T

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
(PCT36条及びPCT規則70)

REC'D 08 MAY 2000

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 NE+99P237A	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP99/05787	国際出願日 (日.月.年) 20.10.99	優先日 (日.月.年) 21.10.98
国際特許分類(IPC) Int. Cl. ⁷ C08G59/62, C08L63/00, C08K3/00, H01L23/29		
出願人(氏名又は名称) 日本電気株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。
- ☒ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)
この附属書類は、全部で 3 ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
 - II ☐ 優先権
 - III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
 - IV ☐ 発明の単一性の欠如
 - V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
 - VI ☐ ある種の引用文献
 - VII ☐ 国際出願の不備
 - VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 20.10.99	国際予備審査報告を作成した日 20.04.00	
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員)	4 J 8016
	小 林 均 印	
電話番号 03-3581-1101 内線 3455		

THIS PAGE BLANK (USPTO)

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。
 PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書 第 1-32 ページ、 出願時に提出されたもの
 明細書 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 請求の範囲 第 2-3, 5-6, 8-9, 11-13 項、 出願時に提出されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 請求の範囲 第 1, 4, 7, 10 項、 24.03.00 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 図面 第 1 図、 出願時に提出されたもの
 図面 第 _____ 図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 図面 第 _____ 図、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)

請求の範囲 1-13

有

請求の範囲

無

進歩性(IS)

請求の範囲 1-13

有

請求の範囲

無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲 1-13

有

請求の範囲

無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

請求項1-13に記載された、難燃剤ならびに難燃助剤を含有しないエポキシ樹脂組成物の硬化物が熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことについては、国際調査報告で引用された文献1[J P, 8-253551, A(油化シエルエポキシ株式会社), 1. 10月. 1996(01. 10. 96)]、文献2[J P, 7-238141, A(住友ベークライト株式会社), 12. 9月. 1995(12. 09. 95)]、文献3[J P, 8-245754, A(東芝ケミカル株式会社), 24. 9月. 1996(24. 09. 96)]には明記されておらず、請求項1-13は新規性・進歩性を有する。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

請求の範囲

1 (補正後). エポキシ樹脂 (A)、フェノール系樹脂 (B)、無機質充填剤 (C) 及び硬化促進剤 (D) を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物は難燃
5 剤ならびに難燃助剤を含有せず、該組成物を硬化させてなる硬化物中の無機質充
填剤 (C) の含有量を W (重量%)、この硬化物の $240 \pm 20^\circ\text{C}$ での曲げ弾性率
を E (kgf/mm^2) とした場合において、前記曲げ弾性率 E が、 $30 \leq W < 60$
のときに $0.015W + 4.1 \leq E \leq 0.27W + 21.8$ となる数値、 60
 $\leq W \leq 95$ のときに $0.30W - 13 \leq E \leq 3.7W - 184$ となる数値を示し、
10 前記硬化物が熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴と
するエポキシ樹脂組成物。

2. 芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む 1 に記載の
エポキシ樹脂組成物。

3. フェニル誘導体及びビフェニル誘導体から選ばれる芳香族類及び／又は多芳
15 香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む 2 に記載のエポキシ樹脂組成物。

4 (補正後). エポキシ樹脂 (A)、フェノール系樹脂 (B)、無機質充填剤 (C) 及び硬化促進剤 (D) を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物は難燃
剤ならびに難燃助剤を含有せず、該組成物を硬化させてなる硬化物中の無機質充
填剤 (C) の含有量を W (重量%) とし、かつ、前記硬化物を計り入れた耐熱性
20 容器を、一定流量の不活性ガスを用いてその雰囲気を不活性状態にした管状炉内
にセットして、 $700 \pm 10^\circ\text{C}$ で 10 分間、前記硬化物を熱分解させた時に発生
する一酸化炭素及び二酸化炭素の前記硬化物に対する重量割合を q_1 (重量%)、
この熱分解が終了した時の残渣、すなわち前記硬化物中の樹脂成分 (無機質充填
剤 (C) 以外の成分) のうちで熱分解せずに残った炭化物と無機質充填剤の前記
25 硬化物に対する重量割合を q_2 (重量%)、前記硬化物に含まれる前記樹脂成分の
前記硬化物に対する重量割合を q_3 (重量%) としたときに、下記式

$$Q_1 (\text{重量}\%) = (q_1 / q_3) \times 100$$

$$Q_2 (\text{重量}\%) = \{(100 - q_1 - q_2) / q_3\} \times 100$$

で表される値 Q_1 及び Q_2 が、それぞれ $Q_1 \geq 5$ 、 $5 \leq Q_2 \leq 50$ の数値を示し、前

THIS PAGE BLANK (USPTO)

記硬化物が熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

5. 芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む4に記載のエポキシ樹脂組成物。

5 6. フェニル誘導体及びビフェニル誘導体から選ばれる芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む5に記載のエポキシ樹脂組成物。

7 (補正後). エポキシ樹脂 (A)、フェノール系樹脂 (B)、無機質充填剤 (C) 及び硬化促進剤 (D) を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物は難燃剤ならびに難燃助剤を含有せず、該組成物を硬化させてなる硬化物中の無機質充填剤 (C) の含有量を W (重量%)、この硬化物の $240 \pm 20^\circ\text{C}$ での曲げ弾性率を E (kgf/mm^2) とした場合において、前記曲げ弾性率 E が、 $30 \leq W < 60$ のときに $0.015W + 4.1 \leq E \leq 0.27W + 21.8$ となる数値、 $60 \leq W \leq 95$ のときに $0.30W - 13 \leq E \leq 3.7W - 184$ となる数値を示すとともに、前記硬化物を計り入れた耐熱性容器を、一定流量の不活性ガスを用いてその雰囲気の不活性状態にした管状炉内にセットして、 $700 \pm 10^\circ\text{C}$ で10分間、前記硬化物を熱分解させた時に発生する一酸化炭素及び二酸化炭素の前記硬化物に対する重量割合を q_1 (重量%)、この熱分解が終了した時の残渣、すなわち前記硬化物中の樹脂成分 (無機質充填剤 (C) 以外の成分) のうちで熱分解せずに残った炭化物と無機質充填剤の前記硬化物に対する重量割合を q_2 (重量%)、前記硬化物に含まれる前記樹脂成分の前記硬化物に対する重量割合を q_3 (重量%) としたときに、下記式

$$Q_1 (\text{重量}\%) = (q_1 / q_3) \times 100$$

$$Q_2 (\text{重量}\%) = \{(100 - q_1 - q_2) / q_3\} \times 100$$

25 で表される値 Q_1 及び Q_2 が、それぞれ $Q_1 \geq 5$ 、 $5 \leq Q_2 \leq 50$ の数値を示し、前記硬化物が熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

8. 芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む7に記載のエポキシ樹脂組成物。

9. フェニル誘導体及びビフェニル誘導体から選ばれる芳香族類及び／又は多芳

THIS PAGE BLANK (USPTO)

香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む 8 に記載のエポキシ樹脂組成物。

10 (補正後). エポキシ樹脂 (A)、フェノール系樹脂 (B)、無機質充填剤 (C) 及び硬化促進剤 (D) を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物は難燃剤ならびに難燃助剤を含有せず、該組成物を硬化させてなる硬化物が、熱分解時
5 及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

11. 芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む 10 に記載のエポキシ樹脂組成物。

12. フェニル誘導体及びビフェニル誘導体から選ばれる芳香族類及び／又は多
10 芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む 11 に記載のエポキシ樹脂組成物。

13. 1～12 のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物を封止樹脂として用いたことを特徴とする半導体装置。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

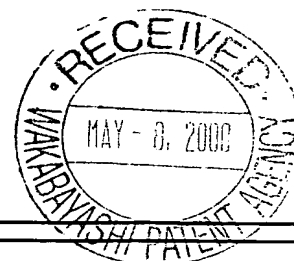
PCT

**NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES**

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:
WAKABAYASHI, Tadashi
16th Kowa Building
8th floor
9-20, Akasaka 1-chome
Minato-ku
Tokyo 107-0052
JAPON



Date of mailing (day/month/year) 27 April 2000 (27.04.00)		
Applicant's or agent's file reference NE+99P237A		IMPORTANT NOTICE
International application No. PCT/JP99/05787	International filing date (day/month/year) 20 October 1999 (20.10.99)	Priority date (day/month/year) 21 October 1998 (21.10.98)
Applicant NEC CORPORATION et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:
KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:
EP,SG

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 27 April 2000 (27.04.00) under No. WO 00/23494

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a **demand for international preliminary examination** must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the **national phase**, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

<p style="text-align: center;">The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No. (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer J. Zahra</p> <p>Telephone No. (41-22) 338.83.38</p>
---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	------------------------------------------------------------------------------------

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

WAKABAYASHI, Tadashi
16th Kowa Building
8th floor
9-20, Akasaka 1-chome
Minato-ku
Tokyo 107-0052
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 26 January 2000 (26.01.00)	
Applicant's or agent's file reference NE+99P237A	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP99/05787	International filing date (day/month/year) 20 October 1999 (20.10.99)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 21 October 1998 (21.10.98)
Applicant NEC CORPORATION et al	

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
21 Octo 1998 (21.10.98)	10/299606	JP	10 Dece 1999 (10.12.99)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer Taïeb Akremi Telephone No. (41-22) 338.83.38
--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	-------------------------------------------------------------------------------

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT

EP



国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)

[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 NE+99P237A	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP99/05787	国際出願日 (日.月.年) 20.10.99	優先日 (日.月.年) 21.10.98
出願人 (氏名又は名称) 日本電気株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 1 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08G59/62, C08L63/00, C08K3/00, H01L23/29

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08G59/62, C08L63/00-10, C08K3/20, C08K3/20, H01L23/29

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 8-253551, A (油化シエルエポキシ株式会社), 0 1. 10月. 1996 (01. 10. 96), 特許請求の範囲, [0 038]欄 (ファミリーなし)	1-13
A	JP, 7-238141, A (住友ベークライト株式会社), 1 2. 9月. 1995 (12. 09. 95), 特許請求の範囲 (ファ ミリーなし)	1-13
A	JP, 8-245754, A (東芝ケミカル株式会社), 24. 9 月. 1996 (24. 09. 96), 特許請求の範囲 (ファミリー なし)	1-13

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13. 01. 00

国際調査報告の発送日

25.01.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小林 均

印

4J

8016

電話番号 03-3581-1101 内線 3455

THIS PAGE BLANK (USPTO)

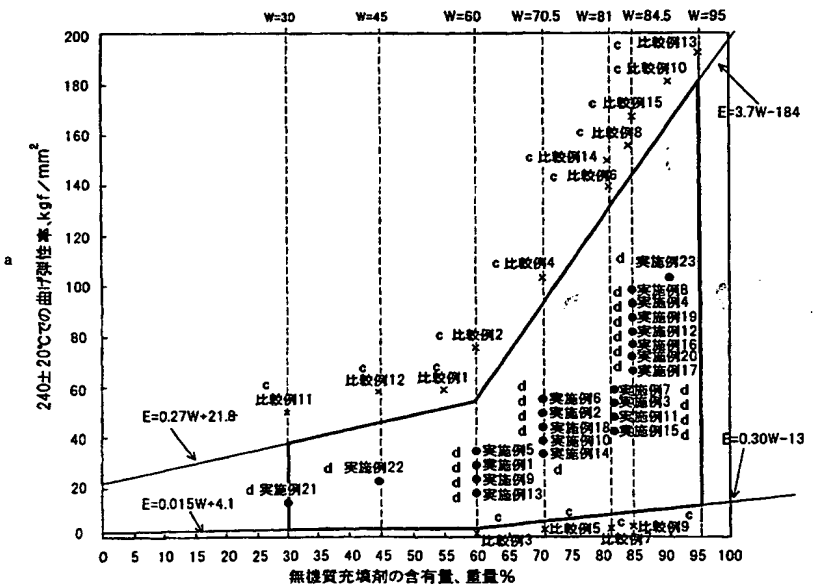
(51) 国際特許分類7 C08G 59/62, C08L 63/00, C08K 3/00, H01L 23/29	A1	(11) 国際公開番号 WO00/23494 (43) 国際公開日 2000年4月27日(27.04.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP99/05787 (22) 国際出願日 1999年10月20日(20.10.99) (30) 優先権データ 特願平10/299606 1998年10月21日(21.10.98) JP (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 日本電気株式会社(NEC CORPORATION)[JP/JP] 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 Tokyo, (JP) 住友ベークライト株式会社 (SUMITOMO BAKELITE COMPANY LIMITED)[JP/JP] 〒140-0002 東京都品川区東品川二丁目5番8号 Tokyo, (JP) (72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 木内幸浩(KIUCHI, Yukihiro)[JP/JP] 位地正年(IJI, Masatoshi)[JP/JP] 寺島克司(TERAJIMA, Katsushi)[JP/JP] 片山 功(KATAYAMA, Isao)[JP/JP] 〒108-8001 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内 Tokyo, (JP)	(11) 国際公開番号 WO00/23494 (43) 国際公開日 2000年4月27日(27.04.00) (74) 代理人 若林 忠, 外(WAKABAYASHI, Tadashi et al.) 〒107-0052 東京都港区赤坂1丁目9番20号 第16興和ビル8階 Tokyo, (JP) (81) 指定国 KR, SG, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE) 添付公開書類 国際調査報告書	

(54) Title: FLAME-RETARDANT EPOXY RESIN COMPOSITION AND SEMICONDUCTOR DEVICE MADE USING THE SAME

(54) 発明の名称 難燃性エポキシ樹脂組成物及びそれを用いた半導体装置

(57) Abstract

A flame-retardant epoxy resin composition for use as a semiconductor encapsulation resin, etc. It gives a cured resin which has improved flame retardancy due to its crosslinked structure even though it contains no flame retardant and is not especially highly loaded with an inorganic filler. The composition comprises an epoxy resin (A), a phenolic resin (B), an inorganic filler (C), and a curing accelerator (D) and gives a cured composition whose flexural modulus at $240 \pm 20^\circ\text{C}$, E (kgf/mm^2), satisfies the relationship $0.015W + 4.1 \leq E \leq 0.27W + 21.8$ when $30 \leq W < 60$ (W is the content of the filler (C) in the cured composition, wt.%) and satisfies the relationship $0.30W - 13 \leq E \leq 3.7W - 184$ when $60 \leq W \leq 95$. The cured composition forms a foamed layer upon pyrolysis and firing to thereby have flame retardancy.



- a ... FLEXURAL MODULUS AT $240 \pm 20^\circ\text{C}$, kgf/mm^2
 b ... CONTENT OF INORGANIC FILLER, wt. %
 c ... COMPARATIVE EXAMPLE
 d ... EXAMPLE

(57)要約

本発明は、半導体封止樹脂等として使用されるエポキシ樹脂組成物であって、難燃剤を一切使用せずに、また無機質充填剤を特に高充填化せずに、その硬化物の架橋構造自体によって難燃性の向上を達成した難燃性エポキシ樹脂組成物を提供する。エポキシ樹脂 (A)、フェノール系樹脂 (B)、無機質充填剤 (C) 及び硬化促進剤 (D) を含有し、かつ、その硬化物中の無機質充填剤 (C) の含有率をW (重量%)、この硬化物の $240 \pm 20^{\circ}\text{C}$ での曲げ弾性率をE (kgf/mm²) とした場合において、前記曲げ弾性率Eが、 $30 \leq W < 60$ のときに $0.015W + 4.1 \leq E \leq 0.27W + 21.8$ となる数値、 $60 \leq W \leq 95$ のときに $0.30W - 13 \leq E \leq 3.7W - 184$ となる数値を示すエポキシ樹脂組成物とする。この組成物の硬化物は、熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示す。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AL	アルバニア	EE	エストニア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AU	オーストラリア	FR	フランス	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LS	レソト	SK	スロヴァキア
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BF	ベルギー	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MA	モロッコ	TD	チャード
BG	ブルガリア	GN	ガンビア	MC	モナコ	TG	トーゴ
BJ	ベナン	GM	ギニア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BR	ブラジル	GW	ギニア・ビサオ	MG	マダガスカル	TZ	タンザニア
BY	ベラルーシ	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM	トルクメニスタン
CA	カナダ	HR	クロアチア		共和国	TR	トルコ
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CH	スイス	IE	アイルランド	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CI	コートジボアール	IL	イスラエル	MW	マラウイ	US	米国
CM	カメルーン	IN	インド	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	VN	ヴェトナム
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	YU	ユーゴスラビア
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー	ZA	南アフリカ共和国
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド	ZW	ジンバブエ
CZ	チェコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

明 細 書

難燃性エポキシ樹脂組成物及びそれを用いた半導体装置

技術分野

5 本発明は、半導体封止樹脂として好適に使用されるエポキシ樹脂組成物に関し、さらに詳述すると、難燃性に優れるとともに、半導体封止樹脂としての信頼性、特に耐半田クラック性、耐湿性及び高温での耐配線腐食性に優れた難燃性エポキシ樹脂組成物に関する。また、本発明は、上記難燃性エポキシ樹脂組成物を用いた半導体装置に関する。

背景技術

10

従来、ダイオード、トランジスタ、集積回路などの電子部品は、主にエポキシ樹脂組成物で封止されている。この半導体封止樹脂として使用されるエポキシ樹脂組成物には、安全性確保のために、UL規格で難燃性の付与が義務付けられている。そのため、上記エポキシ樹脂組成物には、通常、難燃剤としてハロゲン系
15 難燃剤が、また難燃助剤として三酸化二アンチモンが配合されている。しかし、近年の環境問題に対する意識の高まりとともに、各種半導体装置の封止樹脂に使用されている難燃剤や難燃助剤にも高度な安全性が要求されている。

ハロゲン系難燃剤は燃焼時に有害なハロゲン系ガスを発生すること、難燃助剤である三酸化二アンチモンは慢性毒性を有する疑いがあることから、これら難
20 燃剤、難燃助剤の環境・衛生面での問題が指摘されており、そのため従来の半導体封止樹脂は安全性が不十分であると現在考えられている。また、高温下では、前記の難燃剤や難燃助剤に由来するハロゲンやアンチモンが、半導体装置の配線の腐食、特に金（Au）ワイヤとアルミニウム（Al）パッドとの界面（異種金属の界面）等の腐食を促進するため、AuワイヤとAlパッドの接合部の接触抵抗
25 抗が大きくなって断線に至る現象が起こり、半導体装置の信頼性、特に高温での耐配線腐食性を低下させる原因となっている。したがって、ハロゲン系難燃剤や三酸化二アンチモンを使用することなく、難燃特性及び信頼性に優れた半導体封止用エポキシ樹脂組成物を開発することが要求されている。

前記の要求に対して、現在、一部で使用され始めている赤リンやリン酸エステル

ルなどのリン系難燃剤は、エポキシ樹脂組成物の難燃化に有用であるが、微量の水分と反応してホスフィンや腐食性のリン酸を生じるので、耐湿性に問題があり、したがって耐湿性に対する要求が特に厳しい電子部品の封止用途には適さない。

また、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の金属水酸化物や、硼素系化合物を難燃剤として用いることも検討されてきたが、これら金属水酸化物や硼素系化合物は、エポキシ樹脂組成物に対して多量に配合しないと十分な難燃性の効果が発現しないため、これらの添加によってエポキシ樹脂組成物の成形性が低下してしまうという問題があった。

さらに、前述したハロゲン系やリン系等の難燃剤を使用する代わりに、エポキシ樹脂組成物に対して無機質充填剤を高充填化すること、例えば87～95重量%添加することにより難燃性を改善した半導体封止用エポキシ樹脂組成物及び半導体装置（特開平8-301984号公報）や、エポキシ樹脂組成物に対して無機質充填剤を83容量%（球状シリカ粉末で91重量%）以上の割合で高充填化することで耐燃焼性を改善したエポキシ樹脂組成物及び半導体封止装置（特開平9-208808号公報）が提案されている。しかし、これらのエポキシ樹脂組成物は、無機質充填剤が高充填化されているために、半導体装置の封止に使用する際の成形性が不十分であるという問題があった。

これに対して、難燃剤を添加しないで樹脂自体を難燃化することに関しては、従来主として、エポキシ樹脂硬化物を構成する樹脂構造の耐熱性（耐熱分解性）を向上させることが検討されてきた。これは、エポキシ樹脂硬化物中の樹脂成分、例えばエポキシ樹脂とフェノール系樹脂との硬化反応によって形成される架橋構造の密度を高くすることにより、加熱時や着火時に起こるこれら樹脂成分の分子振動を制限して、この樹脂成分の熱分解を抑制するとともに、この時に発生する可燃成分を含む分解ガスの発生量を低減することで、樹脂成分の燃焼を最小限に止めてエポキシ樹脂硬化物の難燃性を向上させようとするものである。しかし、これらの検討では、十分な難燃性は得られていなかった。

発明の開示

本発明は、前述した問題点に鑑みてなされたもので、難燃剤を一切使用せずに、

また無機質充填剤を特に高充填化せずに、その硬化物の架橋構造自体によって難燃性の向上を達成したエポキシ樹脂組成物を提供することを目的としている。この難燃性エポキシ樹脂組成物は、その硬化物が熱分解時や着火時に燃焼部への熱の伝達と酸素供給を抑えることができる発泡層を形成することで高度な難燃性を示すとともに、半導体封止樹脂としての信頼性、例えば耐半田クラック性や耐湿性等、特に高温での耐配線腐食性に優れたものである。また、本発明は、前記難燃性エポキシ樹脂組成物を用いた半導体装置を提供することを目的としている。

前記目的を達成するため、本発明は、下記（１）～（４）のエポキシ樹脂組成物を提供する。

（１）エポキシ樹脂（Ａ）、フェノール系樹脂（Ｂ）、無機質充填剤（Ｃ）及び硬化促進剤（Ｄ）を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物を硬化させてなる硬化物中の無機質充填剤（Ｃ）の含有量を W （重量％）、この硬化物の $240 \pm 20^\circ\text{C}$ での曲げ弾性率を E （ kgf/mm^2 ）とした場合において、前記曲げ弾性率 E が、 $30 \leq W < 60$ のときに $0.015W + 4.1 \leq E \leq 0.27W + 21.8$ となる数値、 $60 \leq W \leq 95$ のときに $0.30W - 13 \leq E \leq 3.7W - 184$ となる数値を示し、前記硬化物が熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

（２）エポキシ樹脂（Ａ）、フェノール系樹脂（Ｂ）、無機質充填剤（Ｃ）及び硬化促進剤（Ｄ）を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物を硬化させてなる硬化物中の無機質充填剤（Ｃ）の含有量を W （重量％）とし、かつ、前記硬化物を計り入れた耐熱性容器を、一定流量の不活性ガスを用いてその雰囲気の不活性状態にした管状炉内にセットして、 $700 \pm 10^\circ\text{C}$ で１０分間、前記硬化物を熱分解させた時に発生する一酸化炭素及び二酸化炭素の前記硬化物に対する重量割合を q_1 （重量％）、この熱分解が終了した時の残渣、すなわち前記硬化物中の樹脂成分（無機質充填剤（Ｃ）以外の成分）のうちで熱分解せずに残った炭化物と無機質充填剤の前記硬化物に対する重量割合を q_2 （重量％）、前記硬化物に含まれる前記樹脂成分の前記硬化物に対する重量割合を q_3 （重量％）としたときに、下記式

$$Q_1 (\text{重量}\%) = (q_1 / q_3) \times 100$$

$$Q_2 \text{ (重量\%)} = \{(100 - q_1 - q_2) / q_3\} \times 100$$

で表される値 Q_1 及び Q_2 が、それぞれ $Q_1 \geq 5$ 、 $5 \leq Q_2 \leq 50$ の数値を示し、前記硬化物が熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

- 5 (3) エポキシ樹脂 (A)、フェノール系樹脂 (B)、無機質充填剤 (C) 及び硬化促進剤 (D) を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物を硬化させてなる硬化物中の無機質充填剤 (C) の含有量を W (重量%)、この硬化物の $240 \pm 20^\circ\text{C}$ での曲げ弾性率を E (kgf/mm^2) とした場合において、前記曲げ弾性率 E が、 $30 \leq W < 60$ のときに $0.015W + 4.1 \leq E \leq 0.27W + 21.8$ となる数値、 $60 \leq W \leq 95$ のときに $0.30W - 13 \leq E \leq 3.7W - 184$ となる数値を示すとともに、前記硬化物を計り入れた耐熱性容器を、一定流量の不活性ガスを用いてその雰囲気の不活性状態にした管状炉内にセットして、 $700 \pm 10^\circ\text{C}$ で10分間、前記硬化物を熱分解させた時に発生する一酸化炭素及び二酸化炭素の前記硬化物に対する重量割合を q_1 (重量%)、この熱分解
- 10 21.8となる数値、 $60 \leq W \leq 95$ のときに $0.30W - 13 \leq E \leq 3.7W - 184$ となる数値を示すとともに、前記硬化物を計り入れた耐熱性容器を、一定流量の不活性ガスを用いてその雰囲気の不活性状態にした管状炉内にセットして、 $700 \pm 10^\circ\text{C}$ で10分間、前記硬化物を熱分解させた時に発生する一酸化炭素及び二酸化炭素の前記硬化物に対する重量割合を q_1 (重量%)、この熱分解
- 15 が終了した時の残渣、すなわち前記硬化物中の樹脂成分 (無機質充填剤 (C) 以外の成分) のうちで熱分解せずに残った炭化物と無機質充填剤の前記硬化物に対する重量割合を q_2 (重量%)、前記硬化物に含まれる前記樹脂成分の前記硬化物に対する重量割合を q_3 (重量%) としたときに、下記式

$$Q_1 \text{ (重量\%)} = (q_1 / q_3) \times 100$$

$$20 \quad Q_2 \text{ (重量\%)} = \{(100 - q_1 - q_2) / q_3\} \times 100$$

で表される値 Q_1 及び Q_2 が、それぞれ $Q_1 \geq 5$ 、 $5 \leq Q_2 \leq 50$ の数値を示し、前記硬化物が熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

- 25 (4) エポキシ樹脂 (A)、フェノール系樹脂 (B)、無機質充填剤 (C) 及び硬化促進剤 (D) を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物を硬化させてなる硬化物が、熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

また、本発明は、前記 (1) ~ (4) のエポキシ樹脂組成物を封止樹脂として用いたことを特徴とする半導体装置を提供する。

本発明による難燃性エポキシ樹脂組成物の難燃メカニズムを以下に述べる。本発明に係るエポキシ樹脂組成物の硬化物では高度な難燃性が得られるが、その理由は、この硬化物の高温（ $240 \pm 20^\circ\text{C}$ ）での曲げ弾性率Eが所定範囲の数値である場合には、熱分解時又は着火時に硬化物の内部で発生する熱分解ガスが、硬化物の層をゴムのように膨張させて発泡層を形成し、この発泡層による未燃焼部への酸素の遮断及び断熱作用によって、硬化物が自己消火性を示すためである。なお、上記発泡層は、フェノールフォーム樹脂などに含まれているような発泡成形法によって人為的に形成されたものとは全く異なり、本発明のエポキシ樹脂硬化物が熱分解したり、着火したりした時に新たに発生するものである。

これに対し、前記弾性率Eが所定範囲よりも高い数値である場合には、硬化物の層が硬すぎるので、熱分解時又は着火時に硬化物の内部で発生する熱分解ガスによって硬化物の層がゴムのように膨張できず、発泡層を形成する代わりに硬化物中に亀裂（クラック）が発生し、その結果、難燃性が大幅に低下するものと考えられる。また、前記弾性率Eが所定範囲よりも低い数値である場合には、熱分解又は着火の初期には発泡層が形成されるが、硬化物の層が柔らかすぎるので、発泡層が容易に壊れ、さらに硬化物全体が高い流動性を示すようになって、液垂れ現象（ドリップ）を起こして燃焼が継続するため、難燃性が大幅に低下するものと考えられる。

エポキシ樹脂硬化物の高温（ $240 \pm 20^\circ\text{C}$ ）での曲げ弾性率Eを、前記のように熱分解時又は着火時に発泡層を形成できるような所定の範囲に調整することは、エポキシ樹脂硬化物の架橋構造中に、芳香族類及び／又は多芳香族類、好ましくは、フェニル誘導体及びビフェニル誘導体から選ばれる芳香族類及び／又は多芳香族類を導入する方法で達成することができる。すなわち、エポキシ樹脂硬化物の架橋構造中に芳香族類や多芳香族類を導入して、従来のエポキシ樹脂硬化物よりも架橋点間の距離を長くすることで、熱分解時又は着火時のような高温下においてエポキシ樹脂硬化物中の自由体積が増加し、その結果、硬化物中の樹脂成分の弾性率が低下して発泡層の形成が容易になり、又、他の炭化水素化合物、例えば飽和炭化水素化合物の導入に比べて樹脂成分そのものの熱分解も抑制され、これにより安定した発泡層の形成が可能になると考えられる。

また、熱分解時又は着火時に樹脂成分が分解して発生するガス成分によって、樹脂層はゴムのように膨張させられて発泡層が形成されるが、この分解ガスが発泡層を破壊して外部に出てくると、分解ガス中に含まれる可燃成分、すなわち低沸点の有機成分に着火して燃焼が継続するので、上記有機成分の発生量がエポキシ樹脂硬化物の難燃性に大きく影響する。具体的には、前記硬化物を計り入れた耐熱性容器を、一定流量の不活性ガスを用いてその雰囲気の不活性状態にした管状炉内にセットして、 $700 \pm 10^\circ\text{C}$ で10分間、前記硬化物を熱分解させた時に発生する一酸化炭素及び二酸化炭素（すなわち分解ガス中の非有機成分）の無機質充填剤（C）以外の成分（樹脂成分）に対する重量割合 Q_1 （重量%）を $Q_1 \geq 5$ の範囲とし、上記樹脂成分から発生する一酸化炭素及び二酸化炭素以外のガス成分（すなわち分解ガス中の有機成分）の樹脂成分に対する重量割合 Q_2 （重量%）を $5 \leq Q_2 \leq 50$ の範囲とした場合には、分解ガスに着火して燃焼が継続する可能性が低くなるので、難燃性が良好になる。

これに対し、 Q_1 及び Q_2 が前記範囲未満の場合には、上記硬化物の樹脂層が十分に発泡しないので、難燃性が低下する。また、 Q_2 が前記範囲を超える場合には、分解ガスに着火して燃焼が継続する可能性が高くなるので、難燃性が低下する。

図面の簡単な説明

図1は、実施例及び比較例のエポキシ樹脂組成物の $240^\circ\text{C} \pm 20^\circ\text{C}$ での曲げ弾性率Eを示すグラフである。

発明を実施するための最良の形態

本発明のエポキシ樹脂組成物（1）は、前記成分（A）～（D）を必須成分とし、かつ、該組成物を硬化させてなる硬化物中の無機質充填剤（C）の含有量をW（重量%）、この硬化物の $240 \pm 20^\circ\text{C}$ での曲げ弾性率をE（kgf/mm²）とした場合において、前記曲げ弾性率Eが、 $30 \leq W < 60$ のときに $0.015W + 4.1 \leq E \leq 0.27W + 21.8$ となる数値、 $60 \leq W \leq 95$ のときに $0.30W - 1.3 \leq E \leq 3.7W - 18.4$ となる数値を示すものである。

これに対し、前記曲げ弾性率Eが、 $30 \leq W < 60$ のときに $E < 0.015W$

+4. 1となる数値、 $60 \leq W \leq 95$ のときに $E < 0.30W - 13$ となる数値である場合には、発泡層が柔らかすぎて壊れやすく、発泡層の形成が効果的に起こらないので、十分な難燃化を達成しにくくなる。一方、前記曲げ弾性率Eが、 $30 \leq W < 60$ のときに $E > 0.27W + 21.8$ となる数値、 $60 \leq W \leq 95$ のときに $E > 3.7W - 184$ となる数値である場合には、硬化物の層が硬すぎて、発泡層の形成が効果的に起こらないので、やはり十分な難燃化を達成しにくくなる。

上記曲げ弾性率Eのより好ましい値は、 $30 \leq W < 60$ のときに $0.015W + 7.1 \leq E \leq 0.27W + 6.8$ となる数値、 $60 \leq W \leq 95$ のときに $0.30W - 10 \leq E \leq 3.7W - 199$ となる数値である。

また、本発明のエポキシ樹脂組成物(1)では、その硬化物中の無機質充填剤(C)の含有量W(重量%)が、 $30 \leq W \leq 95$ の領域に含まれることが好ましい。上記含有量Wが $W < 30$ の領域に含まれる場合には、発泡層が柔らかすぎて壊れやすく、発泡層の形成が効果的に起こらないので、十分な難燃化を達成しにくくなる。一方、上記含有量Wが $W > 95$ の領域に含まれる場合には、硬化物の層が硬すぎて、発泡層の形成が効果的に起こらないので、やはり十分な難燃化を達成しにくくなる。さらに、上記無機質充填剤(C)の含有量Wのより好ましい値は、 $30 \leq W < 87$ の領域に含まれる数値である。 $W \geq 87$ の場合には、エポキシ樹脂組成物の成形性が低下するので好ましくない場合がある。

本発明のエポキシ樹脂組成物(2)は、前記成分(A)～(D)を必須成分とし、かつ、該組成物を硬化させてなる硬化物中の無機質充填剤(C)の含有量をW(重量%)とし、かつ、前記硬化物を計り入れた耐熱性容器を、一定流量の不活性ガスを用いてその雰囲気の不活性状態にした管状炉内にセットして、 $700 \pm 10^\circ\text{C}$ で10分間、前記硬化物を熱分解させた時に発生する一酸化炭素及び二酸化炭素の前記硬化物に対する重量割合を q_1 (重量%)、この熱分解が終了した時の残渣、すなわち前記硬化物中の樹脂成分(無機質充填剤(C)以外の成分)のうちで熱分解せずに残った炭化物と無機質充填剤の前記硬化物に対する重量割合を q_2 (重量%)、前記硬化物に含まれる前記樹脂成分の前記硬化物に対する重量割合を q_3 (重量%)としたときに、下記式

$$Q_1 \text{ (重量\%)} = (q_1 / q_3) \times 100$$

$$Q_2 \text{ (重量\%)} = \{(100 - q_1 - q_2) / q_3\} \times 100$$

で表される値 Q_1 及び Q_2 が、それぞれ $Q_1 \geq 5$ 、 $5 \leq Q_2 \leq 50$ の数値を示すものである。

- 5 ここで、前記値 Q_1 は、樹脂成分から発生する一酸化炭素及び二酸化炭素、すなわち分解ガス中の非有機成分（難燃成分）の樹脂成分に対する重量割合に該当し、前記値 Q_2 は、樹脂成分から発生する一酸化炭素及び二酸化炭素以外のガス成分、すなわち、主として分解ガス中の有機成分（可燃成分）の樹脂成分に対する重量割合に該当する。また、樹脂成分とは、エポキシ樹脂、フェノール系樹脂（硬化剤）及び有機成分の添加剤（離型剤、カップリング剤、カーボンブラック等）を意味する。
- 10

- これに対し、前記値 Q_1 及び Q_2 が、 $Q_1 < 5$ 及び $Q_2 < 5$ の領域に含まれる場合には、硬化物の樹脂層の発泡が不十分で、硬化物を難燃化するのに十分な発泡層が形成されないため、難燃性が低下する。前記値 Q_2 が $Q_2 > 50$ の領域に含まれる場合には、分解ガス中の可燃成分の割合が高いために、分解ガスに二次的に着火して燃焼が継続しやすくなるので、発泡層が形成されても、エポキシ樹脂硬化物の難燃性が低下する傾向がある。上記 Q_1 及び Q_2 のより好ましい値は、それぞれ $Q_1 \geq 10$ 、 $5 \leq Q_2 \leq 45$ となる数値である。
- 15

- 本発明のエポキシ樹脂組成物（3）は、前述した本発明のエポキシ樹脂組成物（1）及び（2）、双方の構成要件及び作用効果を備えたものである。この場合、本発明のエポキシ樹脂組成物（3）において、前記値 E 、 W 、 Q_1 及び Q_2 に関しては、本発明のエポキシ樹脂組成物（1）及び（2）に関して述べたのと同様である。
- 20

- 本発明のエポキシ樹脂組成物（1）～（4）は、芳香族類及び／又は多芳香族類をその硬化物の架橋構造中に含むことが好ましく、これによって硬化物の難燃性、耐熱性、耐湿性がより向上する。
- 25

また、上記芳香族類及び／又は多芳香族類は、フェニル誘導体及びビフェニル誘導体から選ばれる1種以上であることが特に好ましく、これによって硬化物の難燃性、耐熱性、耐湿性がより一層向上する。

本発明のエポキシ樹脂組成物において、エポキシ樹脂（Ａ）、フェノール系樹脂（Ｂ）、無機質充填剤（Ｃ）及び硬化促進剤（Ｄ）としては、例えば下記のものを用いることができるが、これらに限定されるものではない。

エポキシ樹脂（Ａ）としては、エポキシ樹脂硬化物の架橋構造中に芳香族類及び／又は多芳香族類を含ませる点、好ましくは、フェニル誘導体及びビフェニル誘導体の１種以上を含ませる点で、分子中に芳香族類及び／又は多芳香族類を含むエポキシ樹脂、好ましくは、エポキシ基を持たないフェニル誘導体、ビフェニル誘導体及び３～４個のエポキシ基が結合した芳香族類の１種以上を含むエポキシ樹脂を特に好適に用いることができる。この場合、エポキシ基を持たないフェニル誘導体を含むエポキシ樹脂としては、例えば後述する式（１）のフェノールフェニルアラルキルエポキシ樹脂等が挙げられ、ビフェニル誘導体を含むエポキシ樹脂としては、例えば後述する式（２）のフェノールビフェニルアラルキルエポキシ樹脂、式（４）のビフェニル－４，４’－ジグリシジルエーテルエポキシ樹脂と３，３’，５，５’－テトラメチルビフェニル－４，４’－ジグリシジルエーテルエポキシ樹脂との組み合わせ等が挙げられ、３～４個のエポキシ基が結合した芳香族類を含むエポキシ樹脂としては、例えば後述する式（３）のテトラフェニロールエタン型エポキシ樹脂等が挙げられる。また、分子中に多芳香族類を含有するエポキシ樹脂の中で、ナフタレン誘導体を含むナフトールアラルキル型エポキシ樹脂等を用いてもよい。さらに、分子中に芳香族類を含有するエポキシ樹脂の中で、例えば後述する式（８）のビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＳ型エポキシ樹脂及びこれらの類縁体を用いてもよい。エポキシ樹脂（Ａ）は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を混合して用いてもよい。

フェノール系樹脂（Ｂ）としては、エポキシ樹脂硬化物の架橋構造中に芳香族類及び／又は多芳香族類を含ませる点、好ましくは、フェニル誘導体及びビフェニル誘導体の１種以上を含ませる点で、分子中に芳香族類及び／又は多芳香族類を含むフェノール系樹脂、好ましくは、水酸基を持たないフェニル誘導体及びビフェニル誘導体の１種以上を含むフェノール系樹脂を特に好適に用いることができる。この場合、水酸基を持たないフェニル誘導体を含むフェノール系樹脂とし

ては、例えば後述する式(9)のフェノールフェニルアラルキル樹脂等が挙げられ、水酸基を持たないビフェニル誘導体を含むフェノール系樹脂としては、例えば後述する式(10)、(13)のフェノールビフェニルアラルキル樹脂等が挙げられる。また、分子中に多芳香族類を含有するフェノール系樹脂の中で、ナフタ
5 レン誘導体を含むナフトールアラルキル型樹脂等を用いてもよい。フェノール系樹脂(B)は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を混合して用いてもよい。この中でも特に難燃性の点でフェノールビフェニルアラルキル樹脂が好ましい。

この場合、前述した分子中に芳香族類及び／又は多芳香族類を含むエポキシ樹脂は、総エポキシ樹脂中に30～100重量%含まれることが難燃性向上の点で
10 好ましい。同様に、前述した分子中に芳香族類及び／又は多芳香族類を含むフェノール系樹脂は、総フェノール系樹脂中に30～100重量%含まれることが難燃性向上の点で好ましい。

さらに、総エポキシ樹脂のエポキシ基数(Ep)に対する総フェノール系樹脂のフェノール性水酸基数(OH)の比(OH/Ep)が、 $1.0 \leq (OH/Ep) \leq 2.5$ であると、これらを硬化させてなる硬化物の難燃性を向上する上でより
15 適当である。前記(OH/Ep)が、 $(OH/Ep) < 1.0$ であると、前記硬化物の熱分解又は着火時に、前記硬化物中のエポキシ樹脂とフェノール系樹脂が形成している架橋構造中に残余しているエポキシ基に由来するアリルアルコール等の可燃成分の発生量が増加することから、難燃性の向上を阻害する可能性がある。
20 また、 $(OH/Ep) > 2.5$ の場合には、前記エポキシ樹脂組成物を硬化させてなる硬化物の架橋密度が低くなりすぎるために、この樹脂組成物の硬化が不十分となり、前記硬化物の耐熱性や強度が不十分となる場合がある。

無機質充填剤(C)としては、半導体封止樹脂に一般に使用されているものを広く使用することができ、例えば、熔融シリカ粉末、結晶シリカ粉末、アルミナ
25 粉末、窒化ケイ素、ガラス繊維等が挙げられる。無機質充填剤(C)は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を混合して用いてもよい。

硬化促進剤(D)としては、半導体封止樹脂に一般に使用されているものを広く使用することができ、エポキシ基とフェノール性水酸基との硬化反応を促進させるものであればよく、例えば、トリフェニルホスフィン、2-メチルイミダゾ

ール、1，8－ジアザビシクロ〔5，4，0〕ウンデセン－7等が挙げられる。
硬化促進剤（D）は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を混合して用いてもよい。

さらに、本発明のエポキシ樹脂組成物には、前記成分（A）～（D）の他に、
5 必要に応じて、カーボンブラック等の着色剤、γ－グリシドキシプロピルトリメ
トキシシラン等のシランカップリング剤、シリコーンオイル、シリコーンゴム等
の低応力成分、天然ワックス、合成ワックス、高級脂肪酸及びその金属塩類、パ
ラフィン等の離型剤といった各種添加剤を適宜配合しても差し支えない。

本発明のエポキシ樹脂組成物は、例えば、構成材料をリボンブレンダーやヘン
10 シェルミキサーなどで予備混練した後、加熱ロールやニーダーなどを用いて混合
することで製造することができる。そして、このエポキシ樹脂組成物を、必要に
応じて有機溶媒や水分を脱気してから、トランスファー成型機や加熱プレス成型
機によって所定の成形条件で加熱して、架橋反応を起こさせて硬化させることで、
高度な難燃性を有するエポキシ樹脂硬化物の成形体を得ることができる。

15 本発明の半導体装置は、本発明のエポキシ樹脂組成物を用いて半導体等の電子
部品を封止したものである。この場合、本発明の半導体装置としては、例えば、
半導体素子をリードフレームのダイパッド上に搭載し、これらをワイヤーボンデ
ィングして接続したものを樹脂で封止してなる半導体装置、リードオンチップ方
式の樹脂封止型半導体装置、ボールグリッドアレイの樹脂封止型半導体装置等を
20 挙げることができるが、これらに限定されるものではなく、本発明の半導体装置
は、半導体等の電子部品を本発明のエポキシ樹脂組成物で封止したものを全て包
含する。

実施例

次に、実施例により本発明を具体的に示すが、本発明は下記実施例に限定され
25 るものではない。以下の実施例及び比較例において、〔%〕とは〔重量%〕を意味
する。

実施例及び比較例で用いたエポキシ樹脂、フェノール系樹脂の略号及び構造を、
まとめて以下に示す。

・エポキシ樹脂1：下記式（1）のフェノールフェニルアラキルエポキシ樹脂

($n=0\sim10$ 、軟化点 55°C 、エポキシ当量 238 g/e q)

・エポキシ樹脂 2 : 下記式 (2) のフェノールビフェニルアラルキルエポキシ樹脂

($n=0\sim10$ 、軟化点 57°C 、エポキシ当量 274 g/e q)

5 ・エポキシ樹脂 3 : 下記式 (3) のテトラフェニロールエタン型エポキシ樹脂を主成分とするエポキシ樹脂組成物

(軟化点 92°C 、エポキシ当量 203 g/e q)

・エポキシ樹脂 4 : 下記式 (4) のビフェニル-4, 4'-ジグリシジルエーテルエポキシ樹脂と 3, 3', 5, 5'-テトラメチルビフェニル-4, 4'-ジグリシジルエーテルエポキシ樹脂との組み合わせを主成分とするエポキシ樹脂組成物

(融点 111°C 、エポキシ当量 170 g/e q)

・エポキシ樹脂 5 : 下記式 (5) のクレゾールノボラックエポキシ樹脂

($n=0\sim10$ 、軟化点 68°C 、エポキシ当量 194 g/e q)

15 ・エポキシ樹脂 6 : 下記式 (6) のジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂

($n=0\sim10$ 、軟化点 56°C 、エポキシ当量 241 g/e q)

・エポキシ樹脂 7 : 下記式 (7) のビスフェノール A 型エポキシ樹脂と臭素化ビスフェノール A 型エポキシ樹脂との組み合わせ

20 ($n=0\sim10$ 、軟化点 70°C 、エポキシ当量 357 g/e q 、臭素含有率 = 臭素 / エポキシ樹脂 = 20 重量%)

・エポキシ樹脂 8 : 下記式 (8) のビスフェノール A 型エポキシ樹脂

($n=0\sim0.8$ 、 25°C の粘度 6500 cps 、エポキシ当量 176 g/e q)

・フェノール系樹脂 1 : 下記式 (9) のフェノールフェニルアラルキル樹脂

($n=0\sim10$ 、軟化点 83°C 、水酸基当量 175 g/e q)

25 ・フェノール系樹脂 2 : 下記式 (10) のフェノールビフェニルアラルキル樹脂

($n=0\sim10$ 、軟化点 120°C 、水酸基当量 208 g/e q)

・フェノール系樹脂 3 : 下記式 (11) のフェノールノボラック樹脂

($n=0\sim10$ 、軟化点 106°C 、水酸基当量 106 g/e q)

・フェノール系樹脂 4 : 下記式 (12) のジシクロペンタジエン型フェノール樹

脂

($n = 0 \sim 10$ 、軟化点 92°C 、水酸基当量 170 g/eq)

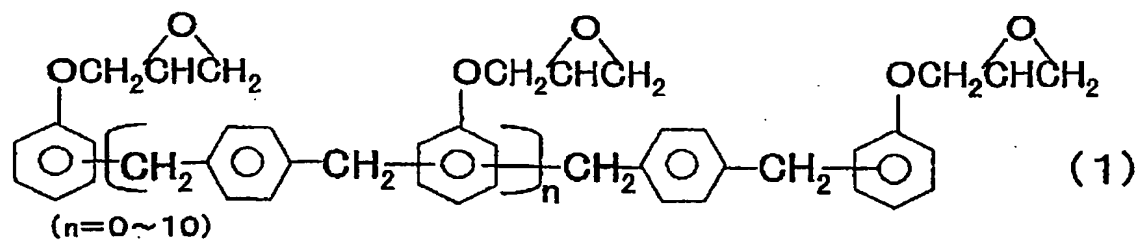
・フェノール樹脂 5 : 下記式 (13) のフェノールビフェニルアラルキル樹脂

($n = 0 \sim 2$ 、軟化点 100°C 、水酸基当量 196 g/eq)

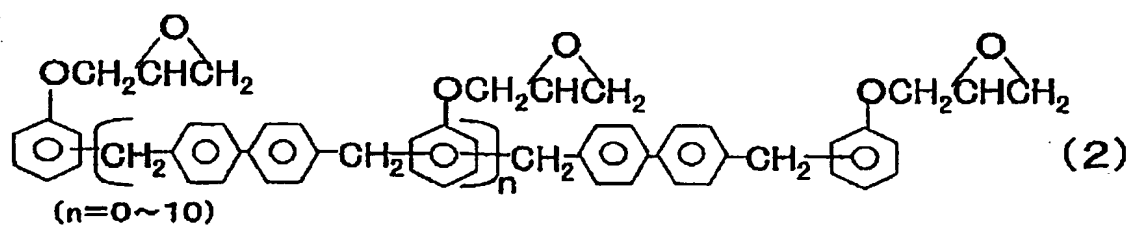
5 ・アミン系硬化剤 1 : 下記式 (14) のジアミノジフェニルメタン

(軟化点 89°C 、活性水素当量 49.5 g/eq)

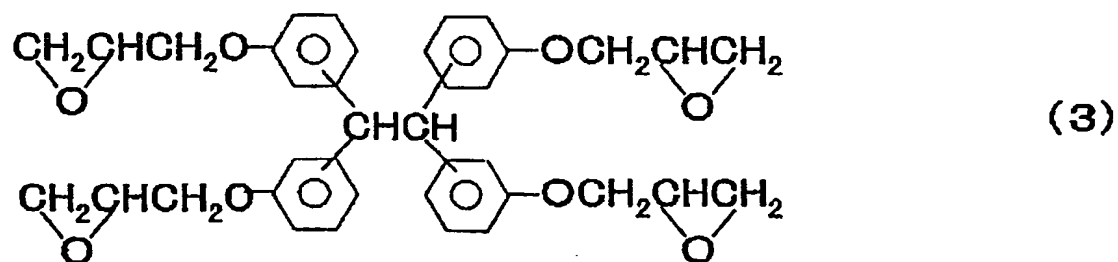
式 (1)



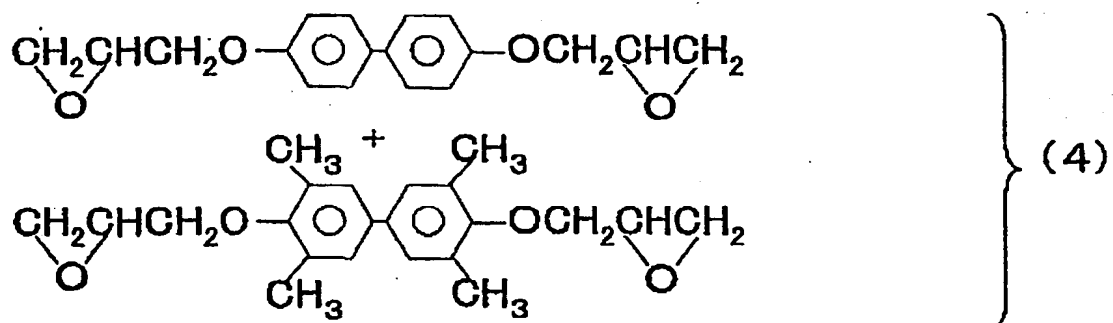
式 (2)



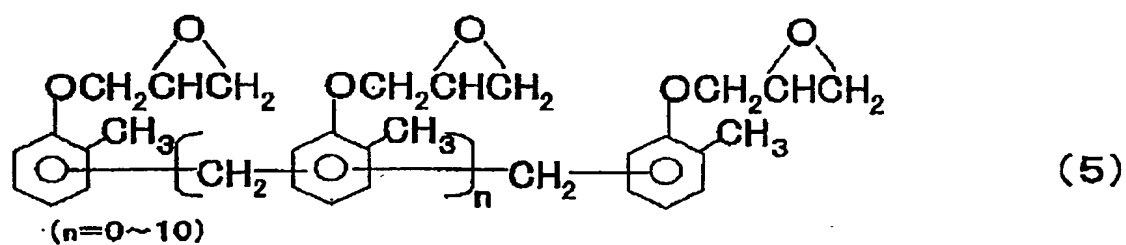
式 (3)



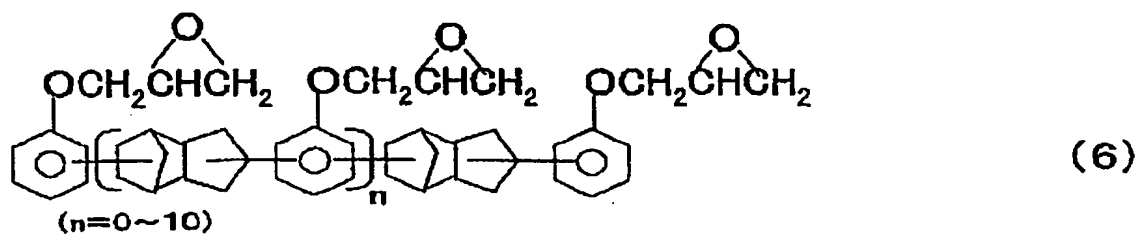
式 (4)



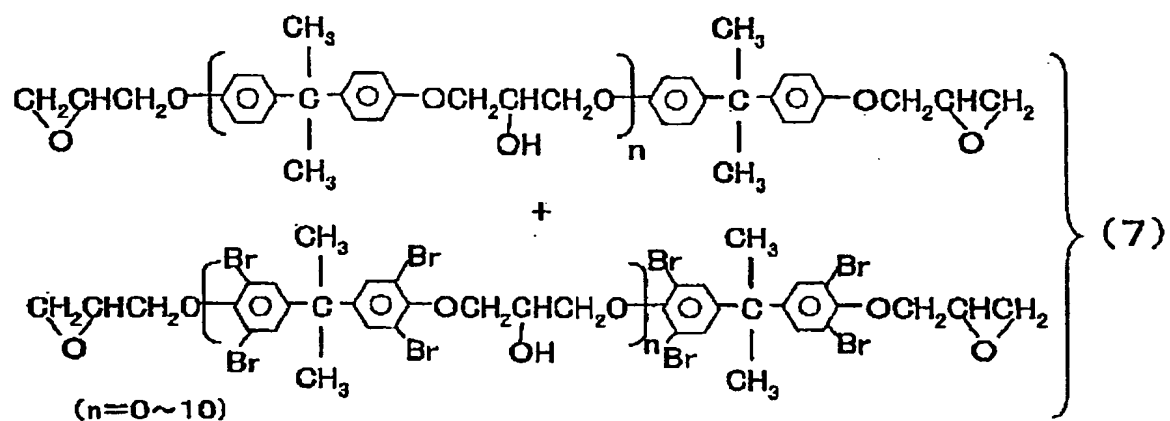
式 (5)



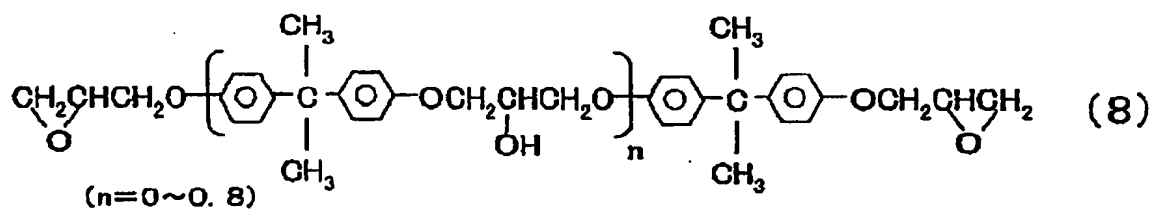
式 (6)



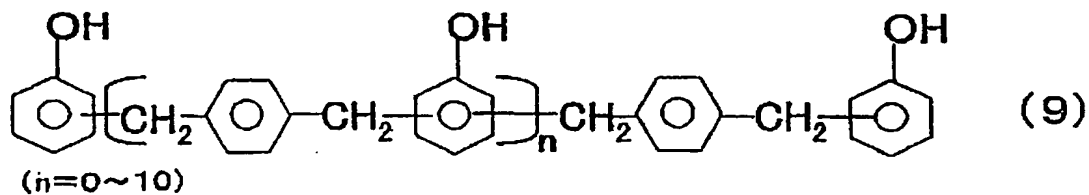
式 (7)



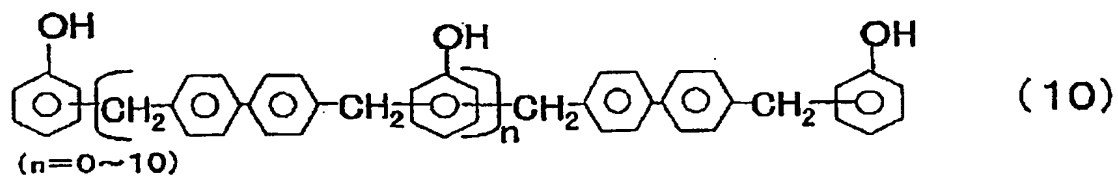
式 (8)



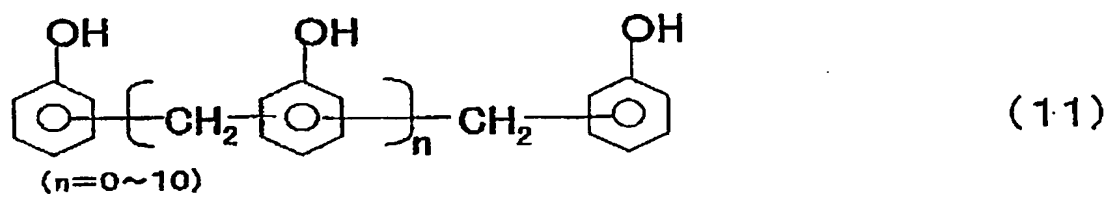
式 (9)



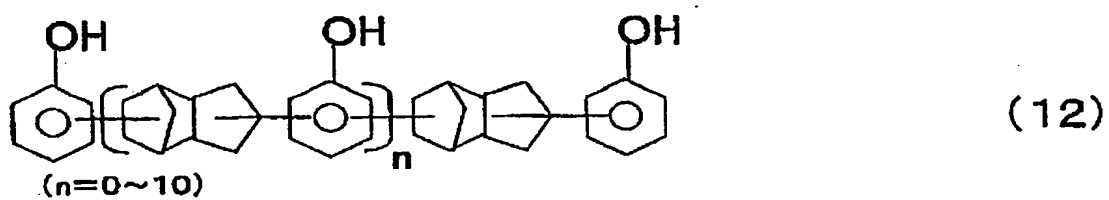
式 (10)



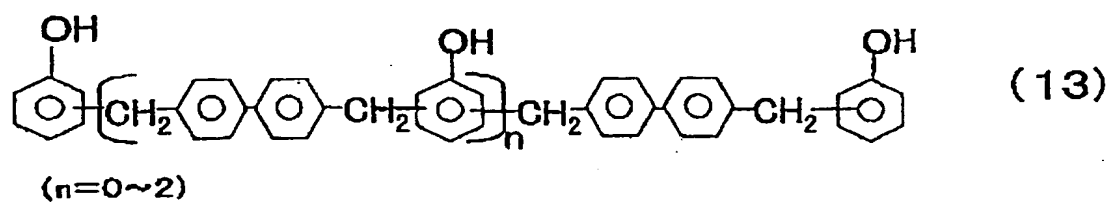
式 (11)



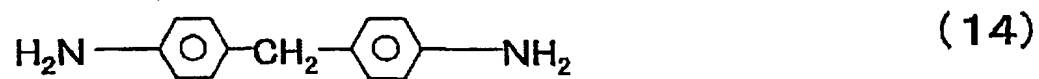
式 (12)



式 (13)



式 (14)



なお、実施例 1, 2, 5, 6, 9, 10, 13, 14, 18, 21, 22、比較例 1～5, 11, 12 で用いた溶融破碎シリカは、平均粒径 $15\mu\text{m}$ 、比表面積 $2.2\text{m}^2/\text{g}$ である。また、実施例 3, 4, 7, 8, 11, 12, 15, 16, 17, 19, 20, 23、比較例 6～10, 13～15 で用いた溶融球状シリカは、平均粒径 $22\mu\text{m}$ 、比表面積 $5.0\text{m}^2/\text{g}$ である。

[実施例 1]

エポキシ樹脂 4 を 16.58%、フェノール系樹脂 2 を 20.23%、溶融破碎シリカ粉末 60.0%、カルナバワックス 0.51%、トリフェニルホスフィン (T. P. P.) 0.40%、シランカップリング剤 1.57% 及びカーボンブラック 0.71% を、常温で予備混合した後、 100°C のロール上で約 5 分間混練したものを、冷却後粉碎して樹脂組成物とした。

上記実施例 1 に示した樹脂組成物を錠剤状に固めたもの (タブレット) を、所定の条件 (シングルプランジャータイプのトランスファー成形機、成形温度 175°C 、タブレット予熱 85°C 、成形時間 120 秒、注入時間 15 秒、注入圧力 $100\text{kgf}/\text{cm}^2$ (実行圧)) で成形した後、後硬化 (175°C 、4 時間) させて硬化物を得た。

前記硬化物を用いて、JIS K6911 に従って曲げ弾性率測定用の成形板を、UL94 難燃規格に従って難燃性試験用の成形板をそれぞれ作成した。前記成形板を用いて、曲げ弾性率の測定及び難燃性試験を行った。難燃性試験後の成形板は切削、加工して断面の観察を反射蛍光顕微鏡で行った。また、前記硬化物を用いてガス分析 (Q_1 及び Q_2 の測定) を行った。

耐半田クラック性は、 $7.5\text{mm} \times 7.5\text{mm} \times 350\mu\text{m}$ のシリコン製チップを、上記実施例 1 に示した樹脂組成物を錠剤状に固めたもの (タブレット) を用いて、所定の条件 (シングルプランジャータイプのトランスファー成形機、成形温度 175°C 、タブレット予熱 85°C 、成形時間 120 秒、注入時間 15 秒、注入圧力 $100\text{kgf}/\text{cm}^2$ (実行圧)) で封入して得られた 80 ピン QFP 型 ($14 \times 20 \times 2.7\text{mm}$) の半導体装置を、後硬化 (175°C 、4 時間) させたものを用いて評価した。

耐湿性及び耐配線腐食性は、線幅及び線間隔 $10\mu\text{m}$ のアルミニウム製の配線

(但し、パッド部は一辺70 μ m角)を施した3.0mm \times 3.5mm \times 350 μ mのシリコン製チップを、16ピンDIP用の42アロイ(ニッケル42%、コバルト・クロム約1%、残りが鉄の合金)のフレームにマウントした後、前記パッド部に直径が28 μ mの金線をワイヤボンドしたものを、上記実施例1に示した樹脂組成物を錠剤状に固めたもの(タブレット)を用いて、所定の条件(シングルプランジャータイプのトランスファー成形機、成形温度175 $^{\circ}$ C、タブレット予熱85 $^{\circ}$ C、成形時間120秒、注入時間15秒、注入圧力100kgf/cm²(実行圧))で封入して得られた16ピンDIP型(18 \times 5 \times 3mm)の半導体装置を、後硬化(175 $^{\circ}$ C、4時間)させたものを用いて評価した。

10 [実施例21]

エポキシ樹脂8を32.07%、フェノール系樹脂5を35.59%、溶融破碎シリカ粉末30.0%、1,8-ジアザビシクロ[5,4,0]ウンデセン-7(D.B.U.)0.34%、シランカップリング剤2.0%を、回分式の攪拌機で混合しながら加熱溶解した後、真空脱泡して樹脂組成物を得た。前記のようにして得られた樹脂組成物を、減圧状態の鋳型に注型した後、所定の条件(80 $^{\circ}$ C \times 2時間+120 $^{\circ}$ C \times 2時間+200 $^{\circ}$ C \times 5時間)で硬化させて硬化物を得た。

15 [比較例11]

エポキシ樹脂8を53.09%、アミン系硬化剤1を14.91%、溶融破碎シリカ粉末30.0%、シランカップリング剤2.0%を、回分式の攪拌機で混合しながら加熱・溶解した後、真空脱泡して樹脂組成物を得た。前記のようにして得られた樹脂組成物を、減圧状態の鋳型に注型した後、所定の条件(80 $^{\circ}$ C \times 2時間+120 $^{\circ}$ C \times 2時間+200 $^{\circ}$ C \times 5時間)で硬化させて硬化物を得た。

前記実施例21及び比較例11の硬化物を用いて、JIS K6911に従って曲げ弾性率測定用の成形板を、UL94難燃規格に従って難燃性試験用の成形板をそれぞれ作成した。前記成形板を用いて、曲げ弾性率の測定及び難燃性試験を行なった。難燃性試験後の成形板は切削、加工して断面の観察を反射蛍光顕微鏡で行った。また、前記硬化物を用いてガス分析(Q₁及びQ₂の測定)を行なった。

以下に、各試験項目とその評価基準をまとめて示す。

曲げ弾性率測定

240℃での曲げ弾性率E (kgf/mm²) の測定試験をJIS K6911に準拠して行った。評価基準は下記の通りとした。

○印…Eの数値が前記の領域内＝自己消火機能が発現

×印…Eの数値が前記の領域外＝燃焼が継続

5 難燃性試験

UL-94 垂直試験を行って難燃性を評価した。以下に試験の手順を示す。成形板（長さ127mm×幅12.7mm×厚み1.6mm）の長さ方向と地面が垂直になるように、サンプル支持具（クランプ）で成形板を固定する。次に、クランプと反対側の成形板の端面にバーナーで10秒間接炎した後、バーナーを遠ざけて成形板上に炎が残っている時間（残炎時間、秒）を測定する（一回目の残炎時間＝F1）。この炎が消えたら、再度バーナーで10秒間接炎した後、バーナーを遠ざけて、一回目と同じように残炎時間（二回目の残炎時間＝F2）を測定する。この試験を、一つのエポキシ樹脂硬化物につき5枚の成形板を用いて行い、難燃性を評価した。ただし、難燃性の判定基準を最高のものから最低のものの順に並べると、UL94V-0、V-1、V-2、NOTV-2の順番になる。

(UL94V-0)

- ・ $\Sigma F \leq 50$ 秒 (ΣF = 5枚の成形板を用いて行った試験の残炎時間の合計)
- ・ $F_{max} \leq 10$ 秒 (F_{max} = 試験で得られたF1又はF2の中で最長の残炎時間)

- 20
- ・ ドリップ（接炎により硬化物が液滴れする現象）なし、クランプまで燃えない。

(UL94V-1)

- ・ $\Sigma F \leq 250$ 秒、 $F_{max} \leq 30$ 秒、ドリップなし、クランプまで燃えない。

(UL94V-2)

- 25
- ・ $\Sigma F \leq 250$ 秒、 $F_{max} \leq 30$ 秒、ドリップあり、クランプまで燃えない。

(UL94NOTV-2)

- ・ $\Sigma F > 250$ 秒、 $F_{max} > 30$ 秒、クランプまで燃えきる。

燃焼後の成形板断面の反射蛍光顕微鏡による観察

○印…発泡層の形成あり。

× 1 印…発泡層の形成なし、クラック（亀裂）が発生。

× 2 印…発泡層の形成なし、硬化物が溶融。

耐半田クラック性の評価試験

80ピンQFP型に封止したテスト用の半導体装置10個を、高温高湿度条件、
すなわち、85℃、85RH%に所定時間（80時間、120時間）暴露した後、
IRリフローを240℃、10秒の条件で3回行って、クラック（内部クラック
と外部クラック）の発生の有無を超音波探査映像装置で観察した。この結果から、
クラックが発生したパッケージ数を測定し、これを耐半田クラック性の指標とし
た。すなわち、この数が少ないほど耐半田クラック性に優れているといえる。

10 耐湿性の評価試験

16ピンDIP型に封止したテスト用の半導体装置10個を用いて、125℃、
100RH%、所定時間（100時間、200時間）、印可電圧20Vの条件で、
プレッシャー・クッカー・バイアス（PCBT）試験を行い、回路のオープン不
良が発生した装置の個数を不良率とし、これを耐湿性の指標とした。すなわち、
15 この数値が低いほど耐湿性に優れているといえる。

耐配線腐食性の評価試験

16ピンDIP型に封止したテスト用の半導体装置10個を、185℃の恒温
槽で所定時間（500時間、720時間）の処理をした後、この装置のチップを
挟んで左右対称の位置にある各ピン間の抵抗値を測定し（計8点）、これらの平均
20 値を求めた。この数値と上記処理を施していない装置の抵抗値（ブランク）との
差が、ブランクに対して20%以上の場合に、その装置を不良とみなした。ここ
では、不良とみなされた装置の個数を不良率とし、これを耐配線腐食性の指標と
した。すなわち、この数値が低いほど耐配線腐食性に優れているといえる。

ガス分析（ Q_1 及び Q_2 の測定）

25 無機質充填剤の含有量がW（重量%）の硬化物（ここでは0.1g）を計り入
れた磁性ボートを、管状炉（LINDOBERG社製）内にセットして、熱分解
温度：700±10℃、熱分解時間：10分間、雰囲気ガス：窒素（N₂）、雰
囲気ガス供給量：0.5L/minの条件で、硬化物を熱分解させた時に発生する
ガス成分をガスバッグに採取して、ガスクロマトグラフィー／熱伝導度検出器（G

C/TCD) で、硬化物の単位重量あたりに発生した一酸化炭素及び二酸化炭素の重量割合 q_1 (重量%) を定量し、さらに熱分解が終了した時の硬化物に対する残渣、すなわち樹脂成分 (例: エポキシ樹脂、フェノール系樹脂、カルナバワックス、T. P. P.、シランカップリング剤、カーボンブラック) のうちで分解せずに残った炭化物と無機質充填剤の重量割合 q_2 (重量%) を秤量した。硬化物に含まれる無機質充填剤 (C) 以外の成分 (前記樹脂成分) の重量割合を q_3 (重量%) としたときに、下記式

$$Q_1 \text{ (重量\%)} = (q_1 / q_3) \times 100$$

$$Q_2 \text{ (重量\%)} = \{(100 - q_1 - q_2) / q_3\} \times 100$$

10 で表される値 Q_1 及び Q_2 をそれぞれ算出した。

[実施例 2 ~ 20、23、比較例 1 ~ 10、13 ~ 15]

表 1 ~ 表 8 の配合に従い、実施例 1 と同様の方法で各試料を作製したのち、実施例 1 と同様の方法で各種特性を評価した。評価結果を表 1 ~ 表 8 及び図 1 に示す。

15 [実施例 22]

表 5 の配合に従い、実施例 21 と同様の方法で各試料を作成したのち、実施例 21 と同様の方法で各種特性を評価した。評価結果を表 5 及び図 1 に示す。

[比較例 12]

20 表 8 の配合に従い、比較例 11 と同様の方法で各試料を作成したのち、比較例 11 と同様の方法で各種特性を評価した。評価結果を表 8 及び図 1 に示す。

表 1

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4
エポキシ樹脂 1 (wt%)				
エポキシ樹脂 2 (wt%)				
エポキシ樹脂 3 (wt%)				
エポキシ樹脂 4 (wt%)	16.58	12.22	7.87	6.42
エポキシ樹脂 5 (wt%)				
エポキシ樹脂 6 (wt%)				
エポキシ樹脂 7 (wt%)				
フェノール系樹脂 1 (wt%)				
フェノール系樹脂 2 (wt%)	20.23	14.91	9.81	7.83
フェノール系樹脂 3 (wt%)				
フェノール系樹脂 4 (wt%)				
OH/E p	1.0	1.0	1.0	1.0
溶融破砕シリカ (wt%)	60.0	70.5		
溶融球状シリカ (wt%)			81.0	84.5
カルナバワックス (wt%)	0.51	0.38	0.24	0.20
T. P. P. (wt%)	0.40	0.30	0.19	0.16
シランカップリング剤 (wt%)	1.57	1.16	0.75	0.61
カーボンブラック (wt%)	0.75	0.53	0.34	0.28
240℃の曲げ弾性率 (kgf/mm ²)	○ 28.0	○ 54.3	○ 72.4	○ 84.8
難燃性 Σ F (秒)	V-0 50	V-0 47	V-0 40	V-0 32
燃焼後の断面観察	○	○	○	○
耐半田クラック性 (数)	80時間	未実施	0	0
	120時間	未実施	2	1
耐湿性： 不良率 (個)	100時間	0	0	0
	200時間	4	3	1
耐配線腐食性： 不良率 (個)	500時間	未実施	0	0
	720時間	未実施	3	2
Q ₁ (wt%)	8	7	8	8
Q ₂ (wt%)	45	45	44	45

表 2

	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8
エポキシ樹脂 1 (wt%)				
エポキシ樹脂 2 (wt%)				
エポキシ樹脂 3 (wt%)	18.22	13.43	8.65	7.05
エポキシ樹脂 4 (wt%)				
エポキシ樹脂 5 (wt%)				
エポキシ樹脂 6 (wt%)				
エポキシ樹脂 7 (wt%)				
フェノール系樹脂 1 (wt%)				
フェノール系樹脂 2 (wt%)	18.59	13.70	8.83	7.20
フェノール系樹脂 3 (wt%)				
フェノール系樹脂 4 (wt%)				
OH/E p	1.0	1.0	1.0	1.0
溶融破砕シリカ (wt%)	60.0	70.5		
溶融球状シリカ (wt%)			81.0	84.5
カルナバワックス (wt%)	0.51	0.38	0.24	0.20
T. P. P. (wt%)	0.40	0.30	0.19	0.16
シランカップリング剤 (wt%)	1.57	1.16	0.75	0.61
カーボンブラック (wt%)	0.71	0.53	0.34	0.28
240℃の曲げ弾性率 (kgf/mm ²)	○ 29.0	○ 67.9	○ 106.1	○ 119.0
難燃性 Σ F (秒)	V-0 35	V-0 28	V-0 20	V-0 17
燃焼後の断面観察	○	○	○	○
耐半田クラック性 (数)	80時間	未実施	0	0
	120時間	未実施	3	1
耐湿性： 不良率 (個)	100時間	0	0	0
	200時間	4	3	2
耐配線腐食性： 不良率 (個)	500時間	未実施	0	0
	720時間	未実施	2	1
Q ₁ (wt%)	9	8	9	9
Q ₂ (wt%)	43	44	44	43

表 3

	実施例 9	実施例 10	実施例 11	実施例 12
エポキシ樹脂 1 (wt%)	21.16	15.59	10.05	8.19
エポキシ樹脂 2 (wt%)				
エポキシ樹脂 3 (wt%)				
エポキシ樹脂 4 (wt%)				
エポキシ樹脂 5 (wt%)				
エポキシ樹脂 6 (wt%)				
エポキシ樹脂 7 (wt%)				
フェノール系樹脂 1 (wt%)	15.65	11.54	7.43	6.06
フェノール系樹脂 2 (wt%)				
フェノール系樹脂 3 (wt%)				
フェノール系樹脂 4 (wt%)				
OH/E p	1.0	1.0	1.0	1.0
溶融破砕シリカ (wt%)	60.0	70.5		
溶融球状シリカ (wt%)			81.0	84.5
カルナバックス (wt%)	0.51	0.38	0.24	0.20
T. P. P. (wt%)	0.40	0.30	0.19	0.16
シランカップリング剤 (wt%)	1.57	1.16	0.75	0.61
カーボンブラック (wt%)	0.71	0.53	0.34	0.28
240℃の曲げ弾性率 (kgf/mm ²)	○ 16.7	○ 31.4	○ 49.1	○ 62.0
難燃性 Σ F (秒)	V-0 21	V-0 18	V-0 14	V-0 10
燃焼後の断面観察	○	○	○	○
耐半田クラック性 (数)	80時間	未実施	0	0
	120時間	未実施	2	1
耐湿性： 不良率 (個)	100時間	0	0	0
	200時間	4	3	1
耐配線腐食性： 不良率 (個)	500時間	未実施	0	0
	720時間	未実施	2	1
Q ₁ (wt%)	10	11	10	11
Q ₂ (wt%)	38	37	37	39

表 4

	実施例 1 3	実施例 1 4	実施例 1 5	実施例 1 6	実施例 1 7
エポキシ樹脂 1 (wt%)					
エポキシ樹脂 2 (wt%)	20.91	15.41	9.93	8.10	6.66
エポキシ樹脂 3 (wt%)					
エポキシ樹脂 4 (wt%)					
エポキシ樹脂 5 (wt%)					
エポキシ樹脂 6 (wt%)					
エポキシ樹脂 7 (wt%)					
フェノール系樹脂 1 (wt%)					
フェノール系樹脂 2 (wt%)	15.90	11.72	7.55	6.15	7.59
フェノール系樹脂 3 (wt%)					
フェノール系樹脂 4 (wt%)					
OH/E p	1.0	1.0	1.0	1.0	1.5
溶融破碎シリカ (wt%)	60.0	70.5			
溶融球状シリカ (wt%)			81.0	84.5	84.5
カルナバックス (wt%)	0.51	0.38	0.24	0.20	0.20
T. P. P. (wt%)	0.40	0.30	0.19	0.16	0.16
シランカップリング剤 (wt%)	1.57	1.16	0.75	0.61	0.61
カーボンブラック (wt%)	0.71	0.53	0.34	0.28	0.28
240℃の曲げ弾性率 (kgf/mm ²)	○ 14.0	○ 28.2	○ 46.8	○ 59.7	○ 39.8
難燃性 ΣF(秒)	V-0 14	V-0 11	V-0 7	V-0 5	V-0 2
燃焼後の断面観察	○	○	○	○	○
耐半田クラック性 (数)	80時間	未実施	0	0	0
	120時間	未実施	2	0	1
耐湿性: 不良率 (個)	100時間	0	0	0	0
	200時間	3	2	1	1
耐配線腐食性: 不良率 (個)	500時間	未実施	0	0	0
	720時間	未実施	1	0	1
Q ₁ (wt%)	11	12	11	11	8
Q ₂ (wt%)	40	39	41	40	41

表 5

	実施例 1 8	実施例 1 9	実施例 2 0	実施例 2 1	実施例 2 2	実施例 2 3	
エポキシ樹脂 1 (wt%)							
エポキシ樹脂 2 (wt%)	12.54	6.60	5.4			5.23	
エポキシ樹脂 3 (wt%)	2.51	1.32	1.08				
エポキシ樹脂 4 (wt%)							
エポキシ樹脂 5 (wt%)							
エポキシ樹脂 6 (wt%)							
エポキシ樹脂 7 (wt%)							
エポキシ樹脂 8 (wt%)				32.0 7	25.0 0		
フェノール系樹脂 1 (wt%)							
フェノール系樹脂 2 (wt%)	12.08	6.33	7.77			3.97	
フェノール系樹脂 3 (wt%)							
フェノール系樹脂 4 (wt%)							
フェノール系樹脂 5 (wt%)				35.5 9	27.7 4		
アミン系硬化剤 1 (wt%)							
OH/E p	1.0	1.0	1.5	1.0	1.0	1.0	
溶融破碎シリカ (wt%)	70.5			30.0	45.0		
溶融球状シリカ (wt%)		84.5	84.5			90.0	
カルナバックス (wt%)	0.38	0.20	0.20			0.13	
T. P. P. (wt%)	0.30	0.16	0.16			0.10	
D. B. U. (wt%)				0.34	0.26		
シランカップリング剤 (wt%)	1.16	0.61	0.61	2.0	2.0	0.39	
カーボンブラック (wt%)	0.53	0.28	0.28			0.18	
240℃の曲げ弾性率 (kgf/mm ²)	○ 42.3	○ 77.1	○ 55.5	○ 11.3	○ 12.9	○ 81.0	
難燃性 Σ F (秒)	V-0 15	V-0 9	V-0 7	V-1 62	V-1 53	V-0 4	
燃焼後の断面観察	○	○	○	○	○	○	
耐半田クラック性 (数)	80時間	0	0	0	未実施	未実施	0
	120時間	2	1	2	未実施	未実施	0
耐湿性： 不良率 (個)	100時間	0	0	0	未実施	未実施	0
	200時間	3	0	2	未実施	未実施	0
耐配線腐食性： 不良率 (個)	500時間	0	0	0	未実施	未実施	0
	720時間	3	0	2	未実施	未実施	0
Q ₁ (wt%)	9	9	8	7	6	11	
Q ₂ (wt%)	42	42	43	44	45	41	

表 6

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5
エポキシ樹脂 1 (wt%)						
エポキシ樹脂 2 (wt%)						
エポキシ樹脂 3 (wt%)						
エポキシ樹脂 4 (wt%)						
エポキシ樹脂 5 (wt%)		26.76	23.80		17.54	
エポキシ樹脂 6 (wt%)				21.60		15.92
エポキシ樹脂 7 (wt%)						
フェノール系樹脂 1 (wt%)						
フェノール系樹脂 2 (wt%)						
フェノール系樹脂 3 (wt%)		14.62	13.01		9.59	
フェノール系樹脂 4 (wt%)				15.21		11.21
OH/E p		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
溶融破砕シリカ (wt%)		55.0	60.0	60.0	70.5	70.5
溶融球状シリカ (wt%)						
カルナバワックス (wt%)		0.58	0.51	0.51	0.38	0.38
T. P. P. (wt%)		0.46	0.40	0.40	0.30	0.30
シランカップリング剤 (wt%)		1.77	1.57	1.57	1.16	1.16
カーボンブラック (wt%)		0.81	0.71	0.71	0.53	0.53
240℃の曲げ弾性率 (kgf/mm ²)		×	×	×	×	×
		58.4	75.4	0.7	103.0	2.7
難燃性 ΣF(秒)		NOT V-2 >250	NOT V-2 >250	V-2 トリップ	NOT V-2 >250	V-2 トリップ
燃焼後の断面観察		×1	×1	×2	×1	×2
耐半田クラック性 (数)	80時間	未実施	未実施	パッケージ が溶融	5	パッケージ が溶融
	120時間	未実施	未実施	パッケージ が溶融	8	パッケージ が溶融
耐湿性： 不良率 (個)	100時間	未実施	4	5	3	4
	200時間	未実施	6	7	5	6
耐配線腐食性： 不良率 (個)	500時間	未実施	未実施	未実施	5	4
	720時間	未実施	未実施	未実施	7	7
Q ₁ (wt%)		10	9	3	10	4
Q ₂ (wt%)		56	55	95	57	94

表 7

		比較例 6	比較例 7	比較例 8	比較例 9	比較例 10
エポキシ樹脂 1 (wt%)						
エポキシ樹脂 2 (wt%)						1.18
エポキシ樹脂 3 (wt%)						
エポキシ樹脂 4 (wt%)						
エポキシ樹脂 5 (wt%)		11.30		9.21		4.72
エポキシ樹脂 6 (wt%)			10.26		8.36	
エポキシ樹脂 7 (wt%)						
フェノール系樹脂 1 (wt%)						
フェノール系樹脂 2 (wt%)						0.66
フェノール系樹脂 3 (wt%)		6.18		5.04		2.64
フェノール系樹脂 4 (wt%)			7.22		5.89	
OH/E p		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
溶融破碎シリカ (wt%)						
溶融球状シリカ (wt%)		81.0	81.0	84.5	84.5	90.0
カルナバックス (wt%)		0.24	0.24	0.20	0.20	0.13
T. P. P. (wt%)		0.19	0.19	0.16	0.16	0.10
シランカップリング剤 (wt%)		0.75	0.75	0.61	0.61	0.39
カーボンブラック (wt%)		0.34	0.34	0.28	0.28	0.18
240°Cの曲げ弾性率 (kgf/mm ²)		×	×	×	×	×
		139.8	4.7	150.6	5.4	155.2
難燃性 ΣF(秒)		NOT V-2 >250	V-2 トリップ	NOT V-2 >250	V-2 トリップ	V-1 112
燃焼後の断面観察		×1	×2	×1	×2	×1
耐半田クラック性 (数)	80時間	4	パッケージ が溶融	3	パッケージ が溶融	2
	120時間	7	パッケージ が溶融	5	パッケージ が溶融	4
耐湿性： 不良率 (個)	100時間	2	2	1	1	1
	200時間	4	5	3	3	2
耐配線腐食性： 不良率 (個)	500時間	4	3	3	2	2
	720時間	6	6	5	4	3
Q ₁ (wt%)		10	3	10	4	9
Q ₂ (wt%)		56	95	57	94	55

表 8

	比較例 1 1	比較例 1 2	比較例 1 3	比較例 1 4	比較例 1 5
エポキシ樹脂 1 (wt%)					
エポキシ樹脂 2 (wt%)					
エポキシ樹脂 3 (wt%)					
エポキシ樹脂 4 (wt%)					
エポキシ樹脂 5 (wt%)			2.97		
エポキシ樹脂 6 (wt%)					
エポキシ樹脂 7 (wt%)				11.94	9.42
エポキシ樹脂 8 (wt%)	53.09	41.38			
フェノール系樹脂 1 (wt%)					
フェノール系樹脂 2 (wt%)					
フェノール系樹脂 3 (wt%)			1.63	3.54	2.83
フェノール系樹脂 4 (wt%)					
フェノール系樹脂 5 (wt%)					
アミン系硬化剤 1 (wt%)	14.91	11.62			
OH/E p	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
溶融破碎シリカ (wt%)	30.0	45.0			
溶融球状シリカ (wt%)			95.0	81.0	84.5
カルナバックス (wt%)			0.06	0.24	0.20
T. P. P. (wt%)			0.05	0.19	0.16
D. B. U. (wt%)					
シランカップリング剤 (wt%)	2.0	2.0	0.20	0.75	0.61
カーボンブラック (wt%)			0.09	0.34	0.28
三酸化二アンチモン (wt%)				2.0	2.0
240℃の曲げ弾性率 (kgf/mm ²)	× 45.4	× 48.1	× 189.5	× 145.1	× 161.2
難燃性 Σ F (秒)	NOT V-2 >250	NOT V-2 >250	V-1 98	V-0 10	V-0 6
燃焼後の断面観察	×1	×1	×1	×1	×1
耐半田クラック性 (数)	80時間	未実施	未実施	8	7
	120時間	未実施	未実施	10	10
耐湿性: 不良率 (個)	100時間	未実施	未実施	3	2
	200時間	未実施	未実施	8	4
耐配線腐食性: 不良率 (個)	500時間	未実施	未実施	4	10
	720時間	未実施	未実施	7	10
Q ₁ (wt%)	8	7	10	7	8
Q ₂ (wt%)	61	62	56	52	53

以上、実施例で示したように、本発明のエポキシ樹脂組成物の硬化物は、高温（ $240 \pm 20^\circ\text{C}$ ）での曲げ弾性率が所定の範囲にあり、熱分解時又は着火時に発泡層を形成するので、比較例に示す高温の曲げ弾性率が所定の範囲外にあるエポキシ樹脂組成物の硬化物よりも、高い難燃性を達成できたことが分かる。また、

5 熱分解時又は着火時に樹脂成分が分解して発生するガス成分によって、樹脂層はゴムのように膨張させられて発泡層が形成されるが、この分解ガスが発泡層を破壊して外部に出てくると、これに含まれる可燃成分、すなわち低沸点の有機成分に着火して燃焼が継続するので、この有機成分の発生量の多寡が難燃性に大きく影響する。実施例に示したように、本発明のエポキシ樹脂組成物の硬化物は、前

10 記数値 Q_1 及び Q_2 が、それぞれ $Q_1 \geq 5$ 、 $5 \leq Q_2 \leq 50$ の数値を示したために、良好な難燃性が得られたが、比較例に示したエポキシ樹脂組成物の硬化物は、 Q_1 及び Q_2 が前記の範囲外の数値を示したために、特に難燃性に支障を生じたことも明らかになった。さらに、この難燃性が良好なエポキシ樹脂組成物を用いた半導体装置は、信頼性、例えば耐半田クラック性、耐湿性及び高温での耐配線腐食性

15 に優れていた。

産業上の利用の可能性

本発明の効果は、従来のハロゲン系難燃剤、リン系難燃剤などの難燃剤を一切使用することなく、また、無機質充填剤を特に高充填化することなく、高い難燃

20 性を有し、かつ信頼性、特に耐半田クラック性及耐湿性に優れた、エポキシ樹脂組成物及びこれを用いた半導体装置を提供できることである。さらに、ハロゲン系難燃剤や三酸化二アンチモンを使用しないので、従来のように高温下で難燃剤、難燃助剤に由来するハロゲンやアンチモンが半導体装置の配線の腐食を促進するという問題を解消でき、半導体装置の信頼性の向上を図れることである。

請求の範囲

1. エポキシ樹脂 (A)、フェノール系樹脂 (B)、無機質充填剤 (C) 及び硬化促進剤 (D) を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物を硬化させてなる硬化物中の無機質充填剤 (C) の含有量をW (重量%)、この硬化物の240±20℃での曲げ弾性率をE (kgf/mm²) とした場合において、前記曲げ弾性率Eが、 $30 \leq W < 60$ のときに $0.015W + 4.1 \leq E \leq 0.27W + 21.8$ となる数値、 $60 \leq W \leq 95$ のときに $0.30W - 13 \leq E \leq 3.7W - 184$ となる数値を示し、前記硬化物が熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴とするエポキシ樹脂組成物。
2. 芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む1に記載のエポキシ樹脂組成物。
3. フェニル誘導体及びビフェニル誘導体から選ばれる芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む2に記載のエポキシ樹脂組成物。
4. エポキシ樹脂 (A)、フェノール系樹脂 (B)、無機質充填剤 (C) 及び硬化促進剤 (D) を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物を硬化させてなる硬化物中の無機質充填剤 (C) の含有量をW (重量%) とし、かつ、前記硬化物を計り入れた耐熱性容器を、一定流量の不活性ガスを用いてその雰囲気の不活性状態にした管状炉内にセットして、700±10℃で10分間、前記硬化物を熱分解させた時に発生する一酸化炭素及び二酸化炭素の前記硬化物に対する重量割合を q_1 (重量%)、この熱分解が終了した時の残渣、すなわち前記硬化物中の樹脂成分 (無機質充填剤 (C) 以外の成分) のうちで熱分解せずに残った炭化物と無機質充填剤の前記硬化物に対する重量割合を q_2 (重量%)、前記硬化物に含まれる前記樹脂成分の前記硬化物に対する重量割合を q_3 (重量%) としたときに、
- 下記式
- $$Q_1 \text{ (重量\%)} = (q_1 / q_3) \times 100$$
- $$Q_2 \text{ (重量\%)} = \{(100 - q_1 - q_2) / q_3\} \times 100$$
- で表される値 Q_1 及び Q_2 が、それぞれ $Q_1 \geq 5$ 、 $5 \leq Q_2 \leq 50$ の数値を示し、前記硬化物が熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴とす

るエポキシ樹脂組成物。

5. 芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む4に記載のエポキシ樹脂組成物。

6. フェニル誘導体及びビフェニル誘導体から選ばれる芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む5に記載のエポキシ樹脂組成物。

7. エポキシ樹脂 (A)、フェノール系樹脂 (B)、無機質充填剤 (C) 及び硬化促進剤 (D) を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物を硬化させてなる硬化物中の無機質充填剤 (C) の含有量をW (重量%)、この硬化物の $240 \pm 20^\circ\text{C}$ での曲げ弾性率をE (kgf/mm²) とした場合において、前記曲げ弾性率Eが、 $30 \leq W < 60$ のときに $0.015W + 4.1 \leq E \leq 0.27W + 21.8$ となる数値、 $60 \leq W \leq 95$ のときに $0.30W - 13 \leq E \leq 3.7W - 184$ となる数値を示すとともに、前記硬化物を計り入れた耐熱性容器を、一定流量の不活性ガスを用いてその雰囲気能不活性状態にした管状炉内にセットして、 $700 \pm 10^\circ\text{C}$ で10分間、前記硬化物を熱分解させた時に発生する一酸化炭素及び二酸化炭素の前記硬化物に対する重量割合を q_1 (重量%)、この熱分解が終了した時の残渣、すなわち前記硬化物中の樹脂成分 (無機質充填剤 (C) 以外の成分) のうちで熱分解せずに残った炭化物と無機質充填剤の前記硬化物に対する重量割合を q_2 (重量%)、前記硬化物に含まれる前記樹脂成分の前記硬化物に対する重量割合を q_3 (重量%) としたときに、下記式

$$Q_1 (\text{重量}\%) = (q_1 / q_3) \times 100$$

$$Q_2 (\text{重量}\%) = \{(100 - q_1 - q_2) / q_3\} \times 100$$

で表される値 Q_1 及び Q_2 が、それぞれ $Q_1 \geq 5$ 、 $5 \leq Q_2 \leq 50$ の数値を示し、前記硬化物が熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

8. 芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む7に記載のエポキシ樹脂組成物。

9. フェニル誘導体及びビフェニル誘導体から選ばれる芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む8に記載のエポキシ樹脂組成物。

10. エポキシ樹脂 (A)、フェノール系樹脂 (B)、無機質充填剤 (C) 及び硬

化促進剤（D）を含有するエポキシ樹脂組成物であって、該組成物を硬化させる硬化物が、熱分解時及び着火時に発泡層を形成して難燃性を示すことを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

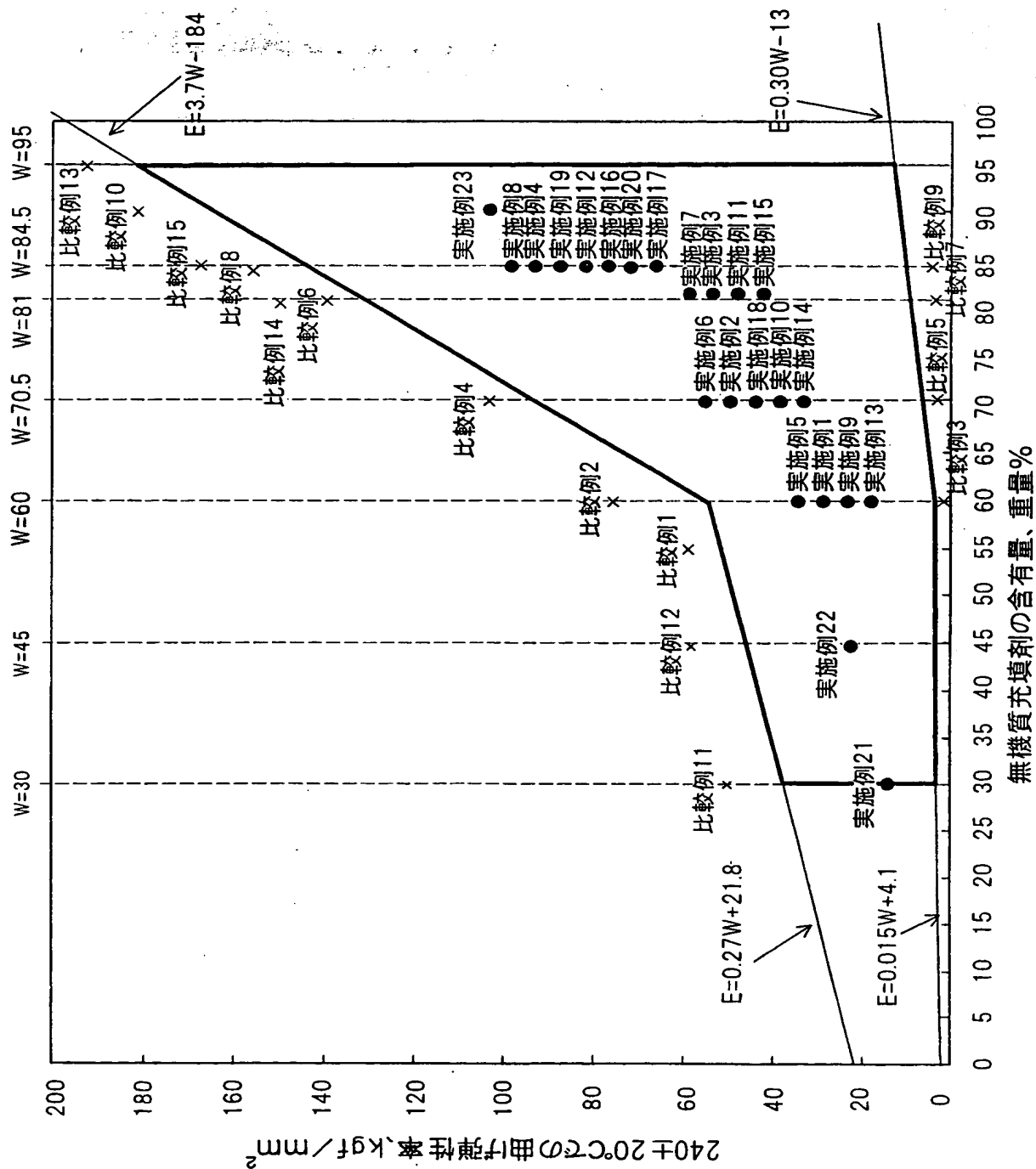
5 11. 芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む10に記載のエポキシ樹脂組成物。

12. フェニル誘導体及びビフェニル誘導体から選ばれる芳香族類及び／又は多芳香族類を前記硬化物の架橋構造中に含む11に記載のエポキシ樹脂組成物。

13. 1～12のいずれかに記載のエポキシ樹脂組成物を封止樹脂として用いたことを特徴とする半導体装置。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

図 1



THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/05787

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C08G59/62, C08L63/00, C08K3/00, H01L23/29

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08G59/62, C08L63/00-10, C08K3/20, C08K3/20,
H01L23/29

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 8-253551, A (Yuka Shell Epoxy K.K.), 01 October, 1996 (01.10.96), Claims; Par. No. [0038], (Family: none)	1-13
A	JP, 7-238141, A (Sumitomo Bakelite Company, Limited.), 12 September, 1995 (12.09.95), Claims (Family: none)	1-13
A	JP, 8-245754, A (Toshiba Chemical Corporation), 24 September, 1996 (24.09.96), Claims (Family: none)	1-13

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
13 January, 2000 (13.01.00)

Date of mailing of the international search report
25 January, 2000 (25.01.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)
THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08G59/62, C08L63/00, C08K3/00, H01L23/29

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08G59/62, C08L63/00-10, C08K3/20, C08K3/20, H01L23/29

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)
WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 8-253551, A (油化シエルエボキシ株式会社), 01.10月. 1996 (01.10.96), 特許請求の範囲, 【038】欄 (ファミリーなし)	1-13
A	JP, 7-238141, A (住友ベークライト株式会社), 12.9月. 1995 (12.09.95), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-13
A	JP, 8-245754, A (東芝ケミカル株式会社), 24.9月. 1996 (24.09.96), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-13

☐ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13.01.00

国際調査報告の発送日

25 January 2000 (25.01.00)

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小林 均

印

4 J

8016

電話番号 03-3581-1101 内線 3455

THIS PAGE BLANK (USPTO)